

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-020684

(43)Date of publication of application : 23.01.1996

(51)Int.Cl.

C08L 23/10  
C08K 3/34  
C08L 23/16  
C08L 23/22  
C08L 53/00  
// (C08L 23/10  
C08L 53:02 )

(21)Application number : 06-156161

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP  
UBE IND LTD

(22)Date of filing : 07.07.1994

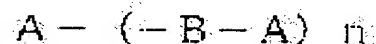
(72)Inventor : HEBIKAWA IKUTOSHI  
NISHIO TAKESUMI  
NOMURA TAKAO  
AKAGAWA TOMOHIKO  
SAKAI IKUNORI  
HINENOYA SABURO

## (54) POLYPROPYLENE RESIN COMPOSITION FOR AUTOMOTIVE INTERIOR TRIM

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject composition, comprising crystalline polypropylene, specific two kinds of hydrogenated block copolymers and specified talc and excellent in rigidity, heat distortion and impact resistances, moldability, surface appearance, etc.

CONSTITUTION: This resin composition comprises (i) a crystalline polypropylene having 7-70g/10min melt flow rate (hereinafter abbreviated to MFR) (at 230°C under 2160g load), (ii) a hydrogenated block copolymer obtained by hydrogenating 99mol% block copolymer of the formula and/or the formula A-B [A is a monovinyl-substituted aromatic hydrocarbon polymer block; B is a conjugated diene elastomeric polymer block: (n) is 1-5], containing 22wt.% part A of the block copolymer and having 5g/10min MFR (at 200°C under 5kg load), (iii) a hydrogenated block copolymer prepared by hydrogenating 90mol% block copolymer of the formula and/or the formula A-B, containing 27wt.% part A of the block copolymer and having 2g/10min MFR (at 200°C under 5kg load) and (iv) talc having 3-5µm average particle diameter measured by a laser diffractometry.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 22.10.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3213481

[Date of registration]

19.07.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-20684

(43) 公開日 平成8年(1996)1月23日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>	識別記号	序内整理番号	P I	技術表示箇所
C 0 8 L 23/10	L C D			
C 0 8 K 3/34	K E F			
C 0 8 L 23/16	L C Y			
23/22	L C Z			
53/00	L L Y			

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平6-156161	(71) 出願人	000003207 トヨタ自動車株式会社 愛知県豊田市トヨタ町1番地
(22) 出願日	平成6年(1994)7月7日	(71) 出願人	000000206 宇都宮産株式会社 山口県宇都市西本町1丁目12番32号
		(72) 発明者	蛇川 育穂 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
		(72) 発明者	西尾 武純 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 羽島 修
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物

(57) 【要約】

【目的】 剛性、耐衝撃性、耐熱変形性などの機械的物性を向上するとともに成形性が良好でかつ表面外観が美麗であり、自動車内装部品用に好適な材料としてのポリプロピレン樹脂組成物を提供すること。

【構成】 (a) 結晶性ポリプロピレン、(b) 特定の水添ブロック共重合体、(c) 上記(b)とは異なる特定の水添ブロック共重合体、(d) 特定のタルクからなる自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

(2)

特開平8-20684

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) メルトフローレイト(230℃、2160g)が7~70g/10分の結晶性ポリプロピレン60~89重量%

(b) 一般式、 $A-(B-A)_n$ および/またはA-B(ここで、Aは、モノビニル置換芳香族炭化水素の重合ブロック、Bは、共役ジエンエラストマー性重合ブロックであり、nは、1~5の整数である)で表わされるブロック共重合体のA部が22重量%以下でかつメルトフローレイト(200℃、5kg)が5g/10分以上であるブロック共重合体を90モル%以上水素添加した水添ブロック共重合体2~16重量%

(c) 一般式、 $A-(B-A)_n$ および/またはA-B(ここで、Aは、モノビニル置換芳香族炭化水素の重合ブロック、Bは、共役ジエンエラストマー性重合ブロックであり、nは、1~5の整数である)で表わされるブロック共重合体のA部が27重量%以上でかつメルトフローレイト(200℃、5kg)が2g/10分以下であるブロック共重合体を90モル%以上水素添加した水添ブロック共重合体2~16重量%

(d) レーザー回折法で測定した平均粒子径が3~5 $\mu$ mのタルク7~25重量%

からなる自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

【請求項2】 結晶性ポリプロピレン(a)が、エチレン含有量0.5~8重量%、ポリプロピレン成分の沸騰n-ヘプタン不溶分95重量%以上、沸騰n-ヘプタン不溶分のアイソタクチック・ペンタッド分率が、0.970以上の結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体である請求項1記載の自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

【請求項3】 結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体の常温p-キシレン可溶分が4~20重量%、常温p-キシレン可溶分のエチレン含有量が20~45重量%、極限粘度(135℃、デカリン)が4dl/g以上である請求項2記載の自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

【請求項4】 水添ブロック共重合体(b)および水添ブロック共重合体(c)の比率(重量比)が(b)/(c)=0.25~4.0である請求項1記載の自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

【請求項5】 タルク(d)のBET比表面積が5~13m<sup>2</sup>/g、トップカット径が20 $\mu$ m未満である請求項1記載の自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

【請求項6】 水添ブロック共重合体((b)+(c))=100重量部に対し、さらに、(e)エチレン含有量60~80重量%、ムーニー粘度ML1+4(100℃)10~70のエチレン・プロピレン共重合体ゴム、および/または(f)エチレン含有量60~80重量%のエチレン・プロピレン・ジエン共重合体ゴム、および/または(g)ブテン含有量10~25重量

2

%、ムーニー粘度ML1+4(100℃)5~20のエチレン・ブテン共重合体ゴム0~200重量部含有する請求項1記載の自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、結晶性ポリプロピレンを主成分とし、軽量化かつ剛性、耐熱変形性、耐衝撃性に優れ、さらに、外観や成形性の良好なポリプロピレン樹脂組成物に関するものであり、特にインストメントパネルやトリム、ヒラー類などの自動車内装用部品に好適に利用できるものである。

【0002】

【従来の技術】従来から、ポリプロピレン樹脂を主成分に、エチレン- $\alpha$ オレフィン共重合ゴムや熱可塑性エラストマーなどの各種ゴム成分と無機充填剤を組み合わせた強化ポリプロピレン樹脂組成物を自動車内装用部品に使用することは、一般に広く行われている。そして、ポリプロピレン樹脂や各種ゴム成分、無機充填剤を種々変えることによって、剛性、耐衝撃性、外観、成形性などを向上させることが提案されている。しかし、これらのポリプロピレン樹脂組成物は、部分的な物性には優れるものの、最近の自動車内装用材料の高度化した要求、例えば、

①高剛性化、高耐衝撃性化、高耐熱変形化などによる薄肉、軽量化要求

②フローマークやウェルドの目立ちの少ない高外観化、および耐受傷性向上などによる無塗装化要求

などについて総合的にバランスして満足できる材料は未だ開発されていない。

【0003】そこで、このような要求に対応しうる材料の開発が急がれている。具体的には下記の公報で示される従来の技術がある。

(1)特開昭58-168649号公報

結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体にエチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体ゴム、無機フィラーを組み合わせた強化ポリプロピレン樹脂組成物であるが、耐衝撃性が低く、成形品にフローマークが発生しやすく外観が満足できない。

(2)特開平3-172339号公報

結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体に水添ブロック共重合体ゴム、および/またはエチレン-プロピレン共重合体ゴム、無機フィラーを組み合わせた強化ポリプロピレン樹脂組成物であるが、耐熱変形性、耐衝撃性、外観、成形性などの総てについて総合的に満足できない。

(3)特開昭61-12742号公報、特開昭61-291247号公報、特開昭63-150343号公報、特開平4-57848号公報

50 結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体に水添ブ

(3)

特開平8-20684

3

ロック共重合体ゴム、および/またはエチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体ゴムなど熱可塑性エラストマー、無機フィラーを組み合わせた強化ポリプロピレン樹脂組成物であるが、いずれも剛性、耐熱変形性が低く満足できるものでない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は剛性、耐衝撃性、耐熱変形性などの機械的物性や外観、成形性などの高度化を同時に行うという従来の技術的課題に基づいてなされたものである。すなわち、本発明の目的は剛性、耐衝撃性、耐熱変形性などの機械的物性を向上するとともに成形性が良好でかつ表面外観が美麗であり、自動車内装部品用に好適な材料としてのポリプロピレン樹脂組成物を提供することにある。本発明者は前記目的を達成するために、結晶性ポリプロピレンのポリマー組成や無機充填剤としてタルクの粒径について研究するとともに、耐衝撃改良効果が大きく、かつ剛性の低下が極めて小さい耐衝撃改良剤について鋭意研究した。その結果、結晶性ポリプロピレンを主成分とし、ポリプロピレンに対する相溶性が高くかつ、耐衝撃性改良効果の高い特定の

【0005】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明は、

(a) メルトフローレイト(230℃、2160g)が7~70g/10分の結晶性ポリプロピレン60~89重量%、(b) 一般式、 $A-(B-A)_n$ および/または $A-B$ (ここで、Aは、モノビニル置換芳香族炭化水素の重合ブロック、Bは、共役ジエンエラストマー性重合ブロックであり、nは、1~5の整数である)で表わされるブロック共重合体のA部が22重量%以下でかつメルトフローレイト(200℃、5kg)が5g/10分以上であるブロック共重合体を90モル%以上水素添加した水添ブロック共重合体2~16重量%、(c) 一般式、 $A-(B-A)_n$ および/または $A-B$ (ここで、Aは、モノビニル置換芳香族炭化水素の重合ブロック、Bは、共役ジエンエラストマー性重合ブロックであり、nは、1~5の整数である)で表わされるブロック共重合体のA部が27重量%以上でかつメルトフローレイト(200℃、5kg)が2g/10分以下であるブロック共重合体を90モル%以上水素添加した水添ブロック共重合体2~16重量%および(d) レーザ回折法で測定した平均粒子径が3~5 $\mu$ mのタルク7~25重量%からなる自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物を提供するものである。

4

【0006】前記自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物において、好ましくは、前記結晶性ポリプロピレン(a)が、エチレン含有量0.5~8重量%、ポリプロピレン成分の沸騰n-ヘプタン不溶分95重量%以上、沸騰n-ヘプタン不溶分のアイソタクチック・ペンタッド分率が、0.970以上の結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体であり、さらに、好ましくは、結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体の常温p-キシレン可溶分が4~20重量%、常温p-キシレン可溶分のエチレン含有量が20~45重量%、極限粘度(135℃ デカリン)が4dl/g以上である自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物である。

【0007】さらに、前記自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物において、好ましくは、前記水添ブロック共重合体(b)および水添ブロック共重合体(c)の比率が(b)/(c)=0.25~4.0、特に好ましくは、(b)/(c)=0.50~2.0である自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物である。また、前記水添ブロック共重合体((b)+(c))=100重量部に対し、さらにエチレン含有量60~80重量%、ムーニー粘度ML1+4(100℃)10~70のエチレン・プロピレン共重合体ゴム(e)、および/またはエチレン含有量60~80重量%のエチレン・プロピレン・ジエン共重合体ゴム(f)、および/またはブテン含有量10~25重量%、ムーニー粘度ML1+4(100℃)5~20のエチレン・ブテン共重合体ゴム(g)を0~200重量部含有してなる自動車内装用ポリプロピレン樹脂組成物である。以下、本発明についてさらに詳しく説明する。

【0008】成分(a)

本発明に用いられる成分(a)の結晶性ポリプロピレンとは、第1工程のみで重合される結晶性プロピレンホモポリマーおよび第1工程で重合される結晶性プロピレンホモポリマーと第2工程で重合されるエチレン・プロピレン共重合体(以下E/P共重合体と言う)との混合物である結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体であり、通常チーグラナッタ型触媒と呼ばれる三塩化チタンおよびアルキルアルミニウム化合物との組合せ触媒の存在下、或いはマグネシウム化合物とチタン化合物との複合触媒などにより重合される。該結晶性ポリプロピレンの第1工程で重合される結晶性プロピレンホモポリマーは剛性、耐熱変形性、耐受傷性の観点から高結晶性が必須であり、沸騰n-ヘプタン不溶分が95重量%以上が必要であり、好ましくは、沸騰n-ヘプタン不溶分が95重量%以上で、かつ沸騰n-ヘプタン不溶分のアイソタクチック・ペンタッド分率が、0.970以上である。沸騰n-ヘプタン不溶分が95重量%未満では剛性、耐熱変形性、耐受傷性が不足する。

【0009】ここで、沸騰n-ヘプタン不溶分とは第1工程で重合される結晶性プロピレンホモポリマーを円筒

濾紙に入れ、ソックスレー抽出器にて $n$ -ヘプタンで6時間沸騰抽出して得られる残渣を求めたものである。また、アイソタクチック・ペンタッド分率は、 $^{13}\text{C}$ -NMRを使用して測定される結晶性ポリプロピレン分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック連鎖であり、プロピレンモノマー単位で5個連続してメソ結合した連鎖の中心にあるプロピレンモノマー単位の分率である。具体的には $^{13}\text{C}$ -NMRスペクトルのメチル炭素領域の全吸収ピーク中のmmmmピーク分率として求める。

【0010】結晶性ポリプロピレンが、結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体である場合は、そのエチレン含有量は好ましくは0.5~8重量%であり、特に好ましくは2~5重量%である。ここでエチレン含有量とは、結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体を熱プレスにてフィルム試験片を作成し、該試験片を赤外分光光度計にかけ、得られた赤外吸収スペクトルのメチル基( $-\text{CH}_3$ )とメチレン基( $-\text{CH}_2-$ )の特性吸収の吸光度を用いて、検量線法により求めたものである。また、該結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体の常温 $p$ -キシレン可溶分(低分子ポリマーと前記第2工程で重合されるE/P共重合体ゴムとからなる)は4~20重量%、特に好ましくは5~12重量%で、エチレン含有量は20~45重量%、好ましくは25~40重量%である。さらに、該常温 $p$ -キシレン可溶分の極限粘度(135°C、デカリン)  $[\eta]$ は4 dl/g以上、好ましくは5 dl/g以上が必要である。

【0011】ここで、常温 $p$ -キシレン可溶分は前記結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体5gを沸騰 $p$ -キシレンに完全に溶解させた後、20°Cに降温し1昼夜放置する。その後これを濾別し $p$ -キシレン不溶分を分離する。濾液にアセトン1500ccを加え攪拌し重合物を析出させ、濾過、乾燥を行い $p$ -キシレンに可溶な重合物を得る。 $p$ -キシレン可溶分エチレン含有量は、プレスフィルム試験片を赤外分光光度計にかけ、得られた赤外吸収スペクトルのメチル基( $-\text{CH}_3$ , 1155  $\text{cm}^{-1}$ )とメチレン基( $-\text{CH}_2-$ )の特性吸収の吸光度を用いて、Gardner'の検量線により求めたものである。\* I. J. Gardner et al, Rubber Chem & Tech 44, 1015 ('71)

結晶性ポリプロピレンはメルトフローレイト(230°C、2160g)が7~70g/10分、好ましくは10~45g/10分である。7g/10分未満では成形時の流動性が悪く、成形サイクルが長くなるとともにフローマークが発生し外観も劣る。また、70g/10分を越すと耐衝撃性が低い。

【0012】成分(b)

本発明に用いられる成分(b)の水添ブロック共重合体とは、一般式が $A-(B-A)_n$ および/または $A-B$ で表わされるブロック共重合体のA部が22重量%以下かつメルトフローレイト(200°C、5kg)が5

g/10分以上であるブロック共重合体を水素添加処理して得られる。ここで、上記一般式において、Aはモノビニル置換芳香族炭化水素の重合ブロック、Bは、共役ジエンエラストマー性の重合ブロックであり、 $n$ は、1~5の整数である。重合ブロックAを構成する単量体のモノビニル置換芳香族炭化水素は、好ましくは、スチレンであるが、 $\alpha$ -メチルスチレン、ビニルトルエン、その他の低級アルキル置換スチレン、ビニルナフタレン基も用いられる。

【0013】重合ブロックBにおける共役ジエン単量体は、ブタジエンもしくはイソプレンが好ましく、また両者の混合物でもよい。重合ブロックBを形成するためブタジエンが単一の共役ジエン単量体として用いられる場合、ブロック共重合体が水素添加されて二重結合が飽和された後にエラストマー性を保持しているためには、ポリブタジエンブロックにおけるマイクロ構造中、1、2-マイクロ構造が20~50%となる重合条件を採用することが好ましい。より好ましくは、1、2-マイクロ構造が35~45%のものである。これらのブロック共重合体の製造方法としては、数多くの方法が提案されている。代表的な方法として、例えば、特公昭40-23798号公報に記載された方法があつて、リチウム触媒またはチーグラー型触媒を用いて不活性溶媒中でブロック共重合体を行わせる。これらのブロック共重合体の水素添加処理は、例えば、特公昭42-8704号、同43-6636号または同46-20814号などの各公報に記載された方法により、不活性溶媒中で触媒の存在下に水素添加することによって行われる。これらの方法により、ブロック共重合体中の二重結合の少なくとも90%、好ましくは、95%以上が水素添加され、水添ブロック共重合体を得ることができる。

【0014】水添ブロック共重合体(b)の重合ブロックAの割合は、22重量%以下、好ましくは、20~10重量%である。重合ブロックAが、22重量%より大きくなると、水添ブロック共重合体(b)のゴムの性能およびポリプロピレンとの相溶性が低下するため、組成物の耐衝撃性が劣る。また、水添ブロック共重合体(b)のメルトフローレイト(200°C、5kg)が5g/10分以上、好ましくは、5~30g/10分である。メルトフローレイトが、5g/10分より小さいと組成物の流動性が低下し、フローマークの発生率が高くなるため、成形品外観を損ねる。上記水添ブロック共重合体(b)としては、具体的にはスチレン・エチレン・ブチレン・スチレン共重合体(SEBS)、スチレン・エチレン・プロピレン・スチレン共重合体(SEP S)、スチレン・エチレン・プロピレン共重合体(SEP)などが挙げられ、これらの中でSEBSが好ましい。

【0015】成分(c)

本発明に用いられる成分(c)の水添ブロック共重合体

とは、一般式が  $A-(B-A)_n$  および/または  $A-B$  で表わされるブロック共重合体のA部が27重量%以上かつメルトフローレイト(200℃、5kg)が2g/10分以下であるブロック共重合体を水素添加処理して得られる。ここで、上記一般式において、Aはモノビニル置換芳香族炭化水素の重合ブロック、Bは、共役ジエンエラストマー性の重合ブロックであり、nは、1~5の整数である。水添ブロック共重合体(c)の重合ブロックAおよびBを構成する単量体、製造方法および水素添加処理方法は、成分(b)で記載したものと同様である。水添ブロック共重合体(c)の重合ブロックAの割合は、27重量%以上、好ましくは、30~50重量%である。重合ブロックAが、27重量%より小さくなると、水添ブロック共重合体(c)のハードセグメント量が不足するため、結果として組成物の剛性および耐熱変形性が劣る。また、水添ブロック共重合体(c)のメルトフローレイト(200℃、5kg)は、2g/10分以下、好ましくは、2~0.05g/10分である。メルトフローレイトが、2g/10分より大きいと組成物の耐衝撃性が劣る。

【0016】上記水添ブロック共重合体(c)としては、具体的にはスチレン・エチレン・ブチレン・スチレン共重合体(SEBS)、スチレン・エチレン・プロピレン・スチレン共重合体(SEPS)、スチレン・エチレン・プロピレン共重合体(SEP)などが挙げられ、これらの中でSEBS、SEPが好ましい。本発明の組成物においては、成分(b)の水添ブロック共重合体と成分(c)の水添ブロック共重合体を併せて用いることが必須であり、好ましくは、成分(b)と成分(c)の配合比率が重量比で  $(b)/(c)=0.25\sim4$ 、0.さらに好ましくは、 $(b)/(c)=0.5\sim2$ 、0の範囲で併用することである。また、成分(b)および成分(c)は、単一成分である必要はなく、それぞれに複数複合して用いてもかまわない。成分(b)と成分(c)を上記範囲で併用することにより、それらが、ポリプロピレン中へ分散した際には、成分(b)が成分(c)を包含した分散相構造を取り、この相構造が組成物の剛性および耐熱変形性と耐衝撃性のバランスを良好なものにしている。成分(b)だけの使用では、耐衝撃性は十分であるが、剛性および耐熱変形性が劣り、特に耐熱変形性の低下が著しい。また、成分(c)だけの使用では、耐衝撃性、特に低温での耐衝撃性の低下が著しくなる。

【0017】成分(d)

本発明のポリプロピレン樹脂組成物において使用されるタルク(d)はレーザー回折法で測定した平均粒子径が3~5μmのもの、好ましくは、レーザー回折法で測定した平均粒子径が3~5μmでトップカット径が20μm未満、BET比表面積が5~13m<sup>2</sup>/gのものを7~25重量%添加するものである。タルクの平均粒子径

およびトップカット径はマイクロトラック粒度分布計(日機装(株)製、7995-40DRA型)を用い、レーザー光源前方散乱光のブラウンホーファー回折式およびハロゲン光源の側方散乱光強度回折式により求めた。平均粒子径が3μm未満の細かいタルクは平均アスペクト比が小さく剛性の改善効果が少ない。平均粒子径が5μmを超えると耐衝撃性が悪く、剛性の改善効果も少ない。トップカット径とは、そのタルクに含まれる最大の粒子の粒子径を言うが、20μm未満であるのが好ましい。また、BET比表面積はタルクに液体窒素温度(77°K)で窒素を吸着させ、その物理吸着量からBET理論により求められる。液体窒素温度での窒素の吸着量は湯浅アイオニクス(株)製、モノソープMS-12を使用して求められ、5~13m<sup>2</sup>/gであることが好ましい。

【0018】本発明のタルクは、タルク原石をローラーミルやクラッシャーなどの公知の粉砕機で所定の平均粒子径付近まで粉砕後、公知の乾式分級機を用い平均粒子径3~5μm以外の物を除く方法により製造できる。また、公知の粉砕機で再粉砕しつつ分級してもよい。また、本発明のタルクはその目的に反しない限り、各種処理剤で表面処理されてもよい。表面処理剤としては、例えば、シランカップリング剤系、高級脂肪酸系、脂肪酸金属塩系、不飽和有機酸またはその誘導体、有機チタネート系、樹脂酸系などの各種処理剤での化学的または物理的表面処理をあげることができる。

【0019】本発明の組成物は、結晶性ポリプロピレン(a)60~89重量%、水添ブロック重合体(b)2~16重量%、水添ブロック重合体(c)2~16重量%およびタルク(d)7~25重量%から構成される。水添ブロック重合体(b)および水添ブロック重合体(c)が、2重量%未満では耐衝撃性の改善効果に乏しく、16重量%を超えると剛性、耐熱変形性などが不足する。また、タルクが7重量%以下では剛性改善効果が乏しく、25重量%以上では耐衝撃性が低下するとともに、軽量化要求にも合わなくなり採用できない。

【0020】さらに、前記成分(a)、(b)、(c)および(d)で構成されるポリプロピレン樹脂組成物の水添ブロック共重合体((b)+(c))=100重量部に対し、さらにエチレン含有量60~80重量%、ムーニー粘度ML1+4(100℃)10~70のエチレン・プロピレン共重合体ゴム(e)、および/またはエチレン含有量60~80重量%のエチレン・プロピレン・ジエン共重合体ゴム(f)、および/またはブテン含有量10~25重量%、ムーニー粘度ML1+4(100℃)5~20のエチレン・ブテン共重合体ゴム(g)を0~200重量部、好ましくは0~100重量部添加することができる。これらエチレン-αオレフィン共重合体ゴムが200重量部を超えると前記水添ブロック共重合体の添加効果が薄れ剛性、耐熱変形性と耐衝撃性の

バランスが低下する。

【0021】本発明のポリプロピレン樹脂組成物を得るには、結晶性ポリプロピレン(a)と水添ブロック共重合体(b)、水添ブロック共重合体(c)およびタルク(d)、さらに、場合によりエチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体ゴム(e, f, g)とを前記範囲で種々の公知の方法、例えばヘンシェルミキサー、V-ブレンダー、リボンブレンダーなどでブレンドし、一軸押出機、二軸押出機、通常の原料供給口の他にシリンダー部に原料供給口を備えた二軸押出機、ニーダー、バンバリーミキサーなどで熔融混合後、ペレット化する方法を採用することができる。

【0022】また、本発明の樹脂組成物を成形して得られる成形品の性能をさらに高めたり、用途により必要な機能を一般的に備えるため、本発明の組成物の各成分を混合する際に、あるいは混合後に、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、顔料、分散剤、塗装性改良剤、成形性改良剤、帯電防止剤、滑剤、核剤、離型剤、などを配合することができる。特に、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、顔料などは添加が望ましい。酸化防止剤としては、2, 6-ジターシャリーブチルフェノール、2, 6-ジターシャリーブチル-4-エチルフェノール、2, 6-ジターシャリーブチル-4-n-ブチルフェノール、2, 6-ジターシャリーブチル- $\alpha$ -ジメチルアミノ-パラ-クレゾール、6-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジターシャリーブチルアニリン)-2, 4-ビスオクチル-チオ-1, 3, 5-トリアジン、n-オクタデシル-3-(4'-ヒドロキシ-3', 5'-ジターシャリーブチルフェニル)プロピオネート、トリス-(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-ターシャリーブチルフェニル)ブタン、テトラキス-[メチレン-3-(3', 5'-ジターシャリーブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジターシャリーブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ジラウリルチオジプロピオネート、などが挙げられる。

【0023】紫外線吸収剤、光安定剤としては、2-ヒドロキシ-4-n-オクトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクタデシルキシベンゾフェノン、4-ドデシルキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、2-(2'-ヒドロキシ-3'-ターシャリーブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、ビス-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸-1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジノールトリデシルアルコール縮合物、などを挙げることができる。

【0024】

【実施例】以下、実施例によって、本発明をさらに詳細に説明するが、本発明をこれらの実施例に限定するもの

でないことはいうまでもない。次に実施例における物性値の測定法を以下に示すが機械的物性の試験片は日本製鋼所(株)製、J100SAII型射出成形機を用い、シリンダー設定温度210℃、金型温度40℃の条件で射出成形し作成した。

(1)メルトフローレイト(MFR)

ASTM D1238に規定された方法による。

(2)曲げ弾性率

ASTM D790に規定された方法による。

(3)アイゾット衝撃強度

ASTM D256に規定された方法による。測定温度は23℃である。

(4)熱変形温度

ASTM D648に規定された方法による。ファイバーストレスは18.5 kg/cm<sup>2</sup>で測定する。

(5)表面硬度

ASTM D685に規定された方法による。鋼球はRを用い評価の値はRスケールで示す。

(6)脆化温度

ASTM D746に規定された方法による。

(7)スパイラルフロー長

厚さ3mm、巾10mm、長さ2000mmのスパイラル状の流路をもつ樹脂流動長測定用金型を用い射出成形を行い流動長を測定した。射出成形は名機製作所(株)製、M100SJ成形機を用い、シリンダー設定温度210℃、射出圧力600 kg/cm<sup>2</sup>、射出時間10秒、金型温度40℃、冷却時間30秒の条件で行った。

(8)フローマーク発生率

フローマークは金型面が忠実に転写されずに流れ方向に垂直に発生する規則的な帯状の凸凹であり、ミクロンオーダーの歪みが成形品表面に発生する不良現象である。フローマーク発生率はスパイラルフロー長の測定試験片でフローマークが発生しはじめた流動長を測定し、全流動長に対するフローマークの発生している流動長の割合を求めた。

【0025】実施例および比較例に使用した各原料は以下の通りである。

(1)結晶性ポリプロピレン

表1に実施例および比較例に用いた結晶性ポリプロピレン組成内容をまとめて示した。

【0026】

【表1】

結晶性ポリプロピレン

(比) (比)

	P-1	P-2	P-3	P-4
MFR (g/10分)	20	20	3	80
エチレン含有量 (wt %)	3.0	-	3.2	2.9
n-ヘプタン不溶分 (wt %)	96.5	97.5	96.0	96.8



(7)

特開平8-20684

11

12

【0027】(2) 水添ブロック共重合体

\*【0028】

表2に実施例および比較例に用いた水添ブロック共重合

【表2】

体の組成およびポリマータイプをまとめた。

\*

水添ブロック共重合体

	(b)	(c)	(c)	(b)	(c)	(c)	(比)	(比)	(比)
	R-1	R-2	R-3	R-4	R-5	R-6	R-7	R-8	R-9
MFR (g/10分)	9	0.2	0.2	29	0.1	0.1	1	10	20
A配合量 (wt%)	13	30	37	19	30	35	13	90	35
ポリマータイプ	SEBS	SEBS	SEP	SEBS	SEBS	SEP	SEBS	SEBS	SEP

A - (-B-A), 全てn=1

A-B

【0029】(3) エチレン-αオレフィン共重合ゴム

※級タルク

R-10: ムーニー粘度ML1+4 (100℃) が4

【0030】実施例1~8 比較例1~9

0. プロピレン含有量が25wt%のエチレン・プロピレン共重合ゴム(日本合成ゴム(株)製、EP931SP)

表3、表4および表5に示した配合処方により、結晶性ポリプロピレン、水添ブロック共重合体、ゴム成分、タルクおよび下記添加剤、顔料とをタンブラーミキサーで混合した後、2軸混練押出機で熔融混練、ペレット化した。このペレットを射出成形機で試験片に成形し、物性試験を行った。結果を表3、表4および表5に示した。本発明の実施例に比べ、比較例1、3および9は、曲げ弾性率、熱変形温度および表面硬度などの剛性が低いため、剛性と耐衝撃性のバランスにおいて劣っている。また、比較例2、4、6および8は、アイゾットおよび脆化温度などの耐衝撃性が低いため、やはり、剛性と耐衝撃性のバランスにおいて劣っている。比較例5および7は、流動性が悪く、フローマーク発生率が高いため、自動車内装用としては、採用できない。

R-11: ムーニー粘度ML1+4 (100℃) が1

3. ブテン-1含有量が13wt%のエチレン・ブテン-1共重合ゴム(日本合成ゴム(株)製、EBM2041P)

R-12: ムーニー粘度ML1+4 (100℃) が8

0. プロピレン含有量が25wt%、ヨウ素価量15wt%のエチレン・プロピレン・ジエン共重合ゴム(日本合成ゴム(株)製、EP57P)

(4) タルク

T-1: 平均粒子径が4.1μmのカルシード(株)

製、分級タルク

T-2: 平均粒子径が6μmのカルシード(株)製、分※30

添加剤 2, 6-ジターシャリーブチル-4-メチルフェノール

0.1 phr

・テトラキス-[メチレン-3-(3', 5'-ジターシャリーブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン

0.2 phr

・ビス-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート

0.2 phr

顔料 酸化鉄

0.7 phr

・酸化チタン

0.3 phr

【0031】

40 【表3】

(8)

特開平8-20684

13

14

## 組成物の物性、外観、成形性

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8
配合 (wt%)	結晶性ポリブレン (a)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-2 (64)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)
	水添ポリブレン共重合体(b)	R-1 (6)	R-1 (6)	R-1 (6)	R-4 (6)	R-1 (8)	R-1 (6)	R-1 (6)	R-1 (6)
	水添ポリブレン共重合体(c)	R-3 (6)	R-2 (6)	R-2 (3) R-3 (3)	R-5 (3) R-6 (3)	R-3 (8)	R-3 (2) R-10 (4)	R-3 (2) R-11 (4)	R-3 (2) R-12 (4)
	タルク (d)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)
MFR (g/10分)		11.2	10.5	10.8	11.2	9.6	10.8	11.7	10.1
曲げ弾性率 (kg/cm <sup>2</sup> )		25800	25500	25500	25300	26200	25200	25500	25200
アイソット(23℃)(kg・cm/cm)		38	30	34	32	38	31	28	28
熱変形温度 (℃)		84	83	83	82	86	82	84	82
表面硬度 (R)		90	88	88	86	92	85	88	84
脆化温度 (℃)		-3.2	-2.5	-3.1	-2.6	-3.0	-2.6	-2.0	-3.0
スパイラルフロー (cm)		109	108	109	109	104	108	110	107
フローマーク発生率 (%)		20	21	20	21	23	23	19	29

【0032】

\* \* 【表4】

## 組成物の物性、外観、成形性

		実施例 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
配合 (wt%)	結晶性ポリブレン (a)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)	P-1 (68)
	水添ポリブレン共重合体(b)	R-1 (6)	R-1 (12)	-	R-1 (6)	R-1 (6)	R-7 (6)	R-9 (6)
	水添ポリブレン共重合体(c)	R-3 (6)	-	R-3 (12)	R-7 (6)	R-8 (6)	R-3 (6)	R-3 (6)
	タルク (d)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)
MFR (g/10分)		11.2	12.0	9.5	10.8	11.8	8.5	11.7
曲げ弾性率 (kg/cm <sup>2</sup> )		25800	23500	26000	23200	25600	25300	28100
アイソット(23℃)(kg・cm/cm)		38	40	18	40	21	16	12
熱変形温度 (℃)		84	72	85	71	83	82	87
表面硬度 (R)		90	78	92	75	89	86	91
脆化温度 (℃)		-3.2	-3.5	+3.0	-3.5	+1.0	+2.6	+5.1
スパイラルフロー (cm)		109	110	102	105	109	99	112
フローマーク発生率 (%)		20	20	30	25	31	45	20

【0033】

【表5】

(9)

特開平8-20684

15

16

## 組成物の物性、外観、成形性

		実施例 1	比較例 7	比較例 8	比較例 9
配合 (%)	結晶性ポリプロピレン (a)	P-1 (68)	P-3 (68)	P-4 (68)	P-1 (68)
	水添ポリ共重合体(b)	R-1 (6)	R-1 (6)	R-1 (6)	R-1 (6)
	水添ポリ共重合体(c)	R-2 (8)	R-3 (6)	R-3 (6)	R-3 (6)
	エチレン-αオレフィン				
タルク (d)		T-1 (20)	T-1 (20)	T-1 (20)	T-2 (20)
MFR (g/10分)		11.2	1.5	55	11.9
曲げ弾性率 (kg/cm <sup>2</sup> )		25800	25000	25700	24700
アイゾット(23℃)(kg・cm/cm)		38	40	10	18
熱変形温度 (°C)		84	78	86	83
表面硬度 (R)		90	85	91	85
融点温度 (°C)		-3.2	-4.0	+7.3	+2.1
スライラルフロー (cm)		109	85	125	109
フローマーク発生率 (%)		20	88	19	20

【0034】

【発明の効果】本発明は、結晶性ポリプロピレンを主成分に、剛性と耐衝撃性のバランスが良好である組合せて併用した特定の接合水添ブロック共重合体、および特定の分級タルクとからなり、曲げ弾性率、耐熱変形性、表\*

\* 面硬度などの剛性とアイゾット衝撃強度とのバランスに優れ、かつ流動性やフローマーク発生性をも改良したものである。本発明により提供される組成物は、物性の向上のみでなく、成形性、表面外観、耐受傷性などの向上が要求される自動車内装部品用に好適に用いられる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

//C 0 8 L 23/10

53:02)

(72)発明者 野村 孝夫

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72)発明者 赤川 智彦

大阪府堺市築港新町3-1 宇部興産株式会社堺工場内

(72)発明者 酒井 郁典

大阪府堺市築港新町3-1 宇部興産株式会社堺工場内

(72)発明者 日根野谷 三郎

大阪府堺市築港新町3-1 宇部興産株式会社堺工場内